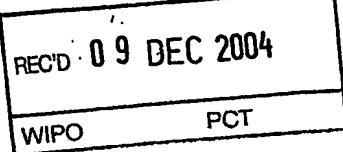


日本国特許庁 18.10.2004
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されて
いる事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed
with this Office.

出願年月日 2004年10月 1日
Date of Application:



出願番号 特願 2004-289669
Application Number:
[ST. 10/C]: [JP 2004-289669]

出願人 原子燃料工業株式会社
Applicant(s):

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2004年11月26日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

小川

洋

BEST AVAILABLE COPY

【書類名】 特許願
【整理番号】 G040404
【提出日】 平成16年10月 1日
【あて先】 特許庁長官殿
【国際特許分類】 G21C 3/58
【発明者】
【住所又は居所】 茨城県那珂郡東海村村松 3135-41 原子燃料工業株式会社
東海事業所内
【氏名】 高橋 昌史
【特許出願人】
【識別番号】 000165697
【氏名又は名称】 原子燃料工業株式会社
【代理人】
【識別番号】 100087594
【弁理士】
【氏名又は名称】 福村 直樹
【手数料の表示】
【予納台帳番号】 012069
【納付金額】 16,000円
【提出物件の目録】
【物件名】 特許請求の範囲 1
【物件名】 明細書 1
【物件名】 図面 1
【物件名】 要約書 1
【包括委任状番号】 9807699

【書類名】特許請求の範囲

【請求項1】

液滴を滴下する滴下ノズルと、前記滴下ノズルに振動を加える加振器と、前記滴下ノズルに対して、実質的に無脈動で液体を供給する送液手段とを備えてなることを特徴とする滴下装置。

【書類名】明細書

【発明の名称】滴下装置

【技術分野】

【0001】

本発明は、滴下装置に関し、特に詳しくは、粒子径がそろった重ウラン酸アンモニウム粒子および二酸化ウラン粒子を製造することができる滴下装置に関する。

【背景技術】

【0002】

非特許文献1～5によると、高温ガス炉用燃料は、一般的に以下のようない工程を経て製造される。まず、酸化ウランの粉末を硝酸に溶かして、硝酸ウラニル溶液とする。次に、この硝酸ウラニル溶液に純水及び増粘剤等を添加し、攪拌して硝酸ウラニル含有原液とする。調製された硝酸ウラニル含有原液は、所定の温度に冷却され、粘度を調製後、細径の滴下ノズルを用いてアンモニア水溶液に滴下される。

【0003】

このアンモニア水溶液に滴下された液滴は、アンモニア水溶液表面に達するまでの間に、アンモニアガスを吹きかけられる。このアンモニアガスによって、液滴表面がゲル化され、これにより、アンモニア水溶液表面到達時における変形が防止される。アンモニア水溶液中における硝酸ウラニルは、アンモニアと十分に反応し、重ウラン酸アンモニウム粒子（以下、「ADU粒子」と略する場合がある。）となる。

【0004】

この重ウラン酸アンモニウム粒子は、乾燥された後、大気中で焙焼され、二酸化ウランよりも酸素を多く含み、酸素／ウランのモル比が2を超える酸化ウラン、例えば、三酸化ウランとなり、さらに還元及び焼結されることにより、高密度のセラミック状の二酸化ウラン粒子となる。この二酸化ウラン粒子を篩い分け、すなわち分級して、所定の粒子径を有する燃料核を得る。

【0005】

この燃料核を流動床に装荷し、被覆ガスを熱分解させることにより被覆を施す。被覆層は、燃料核表面から第一層、第二層、第三層、および第四層を被覆することにより形成されている。第一層の低密度炭素の場合は、約1400℃でアセチレン（C₂H₂）を熱分解して得られる。第二層および第四層の高密度熱分解炭素の場合は、約1500℃でプロピレン（C₃H₆）を熱分解して得られる。第三層のSiCの場合は約1600℃でメチルトリクロロシラン（CH₃SiCl₃）を熱分解して得られる。

【0006】

一般的な燃料コンパクトは、以上のようにして得られた被覆燃料粒子を黒鉛粉末、粘結剤等からなる黒鉛マトリックス材とともに、中空円筒形状または円筒形状にプレス成型またはモールド成型した後、焼成して得られる。

【0007】

【非特許文献1】S. Kato "Fabrication of HTTR First Loading fuel", IAEA-TECDOC-1210, 187 (2001)

【0008】

【非特許文献2】N. Kitamura "Present status of initial core fuel fabrication for the HTTR" IAEA-TECDOC-988, 373 (1997)

【非特許文献3】林君夫、"高温工学試験研究炉の設計方針、製作性及び総合的健全性評価" JAERI-M 89-162 (1989)

【非特許文献4】湊和生、"高温ガス炉燃料製造の高度技術の開発" JAERI-Research 98-070 (1998)

【0009】

【非特許文献5】長谷川正義、三島良績 監修「原子炉材料ハンドブック」昭和52 出証特2004-3107495

年10月31日発行 221-247頁、日刊工業新聞社

【0010】

上記したように、調製された硝酸ウラニル含有原液は、所定の温度に冷却され、粘度を調整後、アンモニア水溶液に滴下される際には、ノズルを用いて、行うのであるが、粒子径がそろった重ウラン酸アンモニウム粒子を精度よく得ることが難しいという問題点がある。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0011】

本発明は、このような従来の問題点を解消し、粒子径がそろった重ウラン酸アンモニウム粒子および二酸化ウラン粒子を製造することができる滴下装置を提供することをその課題とする。

【課題を解決するための手段】

【0012】

前記課題を解決するための手段として、

請求項1は、液滴を滴下する滴下ノズルと、前記滴下ノズルに振動を加える加振器と、前記滴下ノズルに対して、実質的に無脈動で液体を供給する送液手段とを備えてなることを特徴とする滴下装置である。

【発明の効果】

【0013】

本発明によれば、実質的に無脈動で液体を供給するので、滴下時の液滴径の大きさに偏差が生じることがない。したがって、粒子径がそろった重ウラン酸アンモニウム粒子を製造することができる。また、このような重ウラン酸アンモニウム粒子を用いるので、粒子径がそろった二酸化ウラン粒子を製造することができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0014】

以下、図1を参照しながらこの発明の一実施形態に係る滴下装置について説明する。ただし、図1に記載された滴下装置は、この発明の一例であり、この発明に係る滴下装置は、図1に記載された滴下装置に限られることはない。

【0015】

滴下装置1は、滴下ノズル2と、加振器3と、送液手段4とを備えてなる。

【0016】

滴下ノズル2は、液滴を滴下する。滴下ノズル2は、管状に形成されてなる。滴下ノズル2は、耐腐食性の材料で形成されている限り、その材料には、特に、制限はなく、例えば、ステンレス鋼、アルミニウム、アルミニウム合金、チタン合金等で形成されることがある。前記滴下ノズル2の先端開口部における水平断面の形状としては、内径が、例えば、 $500 \sim 1000 \mu\text{m}$ の円形であるのが好ましい。このような内径を有する滴下ノズル2から滴下原液を滴下すると、滴下する液滴は、滴下ノズルの振動数や送液流量にも依存するが、例えば、 $0.8 \sim 2.5 \text{ mm}$ の範囲内になる。また、前記滴下ノズル2の他端開口部には、送液手段4が接続されている。また、滴下ノズル2の直下には、アンモニア水溶液を貯留するアンモニア水溶液貯留槽5が配置されている。

【0017】

加振器3は、例えば、滴下ノズル2の上方に配置され、前記滴下ノズル2に対して所定の振動数で振動を加える。加振器3は、滴下ノズル2それぞれに垂直方向に所定の振動数で振動を与えることができるよう構成され、例えば電磁式振動発生器、機械式振動発生器、または超音波振動発生器等を採用して形成することができる。

【0018】

送液手段4は、前記滴下ノズル2に対して、実質的に無脈動で、かつ一定流量で液体を供給することができるよう、形成される。送液手段4としては、例えば、無脈動ポンプ、定量ポンプ等を挙げることができる。

【0019】

また、送液手段4は、滴下原液を貯留する滴下原液貯留槽6と接続されている。滴下原液は、硝酸ウラニル、純水、及び増粘剤等を含有する。前記増粘剤としては、ポリビニルアルコール、アルカリ条件下で凝固する樹脂、ポリエチレングリコール及びメトローズ等を挙げることができる。この滴下原液は、所定の温度に冷却、維持されて粘度の調整が行われた後に、滴下ノズル2に送出される。

【0020】

加振器3により滴下ノズル2に加えられる振動数と送液手段4による滴下原液の送液量とは以下の式(1)で示される関係を有する。

【0021】

$$d^3 = KQ/f \quad \dots \quad (1)$$

【0022】

前記式(1)において、dは滴下ノズル2から滴下される液滴の粒径を示し、fは加振器3により滴下ノズル2に加えられる振動の振動数を示し、Qは送液手段4により供給される滴下原液の流量を示し、Kは定数である。この式を満たして一定の粒径の液滴を滴下する滴下ノズルから滴下させるには、送液手段4により供給される滴下原液の送液量に変動を生じないようにさせる必要がある。換言すると、上記式(1)が満たされるように送液手段4により滴下ノズル2に滴下原液が送液されることになる。滴下ノズル2から滴下する液滴により滴下ノズル2に滴下原液が送液されることになる。滴下ノズル2から滴下する液滴の粒径を、送液手段4から無脈動で送液される滴下原液の送液量と加振器3により滴下ノズル2に加えられる振動の振動数とを適宜に調節することになる。

【0023】

例えば、加振器3により与えられる振動の振動数は通常、40～150Hzであり、送液手段4から送り出される滴下原液の送液量は例えば、0.1～1L/minである。

【0024】

[重ウラン酸アンモニウム粒子の製造手順]

例えば硝酸ウラニルに増粘剤等添加物を加え、混合調整して得られた滴下原液(0.7～0.9mol-U/L)は、冷却されることにより粘度が滴下原液貯留槽6内で調整される。この粘度の調整後に、滴下原液は、本発明に係る滴下装置1を用いて、アンモニア水溶液貯留槽5中のアンモニア水溶液に滴下される。

【0025】

この際、図1に示されるように、送液手段4を使用して、無脈動で、一定流量で滴下原液が滴下原液貯留槽6から滴下ノズル2に送液される。送液された滴下ノズル2には、加振器3によって、所定の振動数の振動が与えられる。振動を与えられた滴下ノズル2は、一定の径を有する液滴を滴下する。

【0026】

アンモニア水溶液貯留槽5中のアンモニア水溶液へ滴下された液滴は、アンモニア水溶液表面に達するまでの間に、アンモニアガスを吹きかけられるよう(図示略)。このアンモニアガスによって、液滴表面をゲル化させるため、アンモニア水溶液表面到達時における変形を防止することができる。アンモニア水溶液中における硝酸ウラニルは、アンモニアと十分に反応し、重ウラン酸アンモニウム粒子(ADU粒子)となる。

【0027】

[燃料核の製造手順]

この重ウラン酸アンモニウム粒子は、十分に粒子内部までADUとなるまで反応させ、ADUを生成する際に生じる硝酸アンモニウムを洗浄除去した上で、乾燥させ、乾燥重ウラン酸アンモニウム粒子を得る。これを大気中で焙焼され、三酸化ウラン粒子とする。さらに、三酸化ウラン粒子は、還元・焼結されることにより、高密度のセラミック状の二酸化ウラン粒子となる。この二酸化ウラン粒子をふるい分け、すなわち分級して、所定の粒子径を有する燃料核を得る。

【0028】

なお、本発明は前記実施形態に限定されるものではなく、本発明の目的を達成できる範

囲での変形、改良は、本発明に含まれるものである。

【実施例】

【0029】

以下、実施例および比較例を挙げて、本発明をより具体的に説明する。なお、本発明は実施例の内容に限定されるものではない。

【0030】

【実施例】

本実施例における滴下原液は、硝酸ウラニル溶液と水溶性環状エーテルとを混合して硝酸ウラニル含有溶液を調製し、水溶性ポリマー（本実施例においては、ポリビニルアルコールを使用した。）と水とを混合して水溶性ポリマー水溶液を調製し、前記水溶性ポリマー水溶液と水溶性環状エーテル（本実施例においては、テトラヒドロフルフリルアルコールを使用した。）とを混合して水溶性ポリマー溶液を調製し、前記硝酸ウラニル含有溶液と前記水溶性ポリマー溶液とを混合して調製される（図2参照）。

【0031】

まず、硝酸ウラニル溶液とテトラヒドロフルフリルアルコール（以下、THFAと称する場合がある。）とを混合して硝酸ウラニル含有溶液を調製した。

【0032】

硝酸ウラニル溶液は、硝酸に酸化ウランを溶解することにより形成した。滴下原液全体中のTHFAは、滴下原液全体の45体積%とした。

【0033】

次に、ポリビニルアルコール（以下、PVAと称する場合がある。）と水とを混合して水溶性ポリマー水溶液を調製する。この水溶性ポリマー水溶液の濃度は、7.3質量%とした。なお、最終的に得られる滴下原液全体中の前記水溶性ポリマー水溶液の割合は、滴下原液全体の17体積%とした。

【0034】

そして、前記水溶性ポリマー水溶液とTHFAとを混合して水溶性ポリマー溶液を調製した。前記水溶性ポリマー水溶液とTHFAとの混合割合は、前記THFAの配合量が、滴下原液中のTHFA全量に対して37体積%となるように調製し、水溶性ポリマー溶液とした。さらに、前記硝酸ウラニル含有溶液と前記水溶性ポリマー溶液とを混合し、滴下原液を得た。なお、この滴下原液のウラン濃度は、0.76mol-U/Lであった。

【0035】

次に、上記条件で調製された滴下原液を無脈動ポンプ（富士テクノ工業（株）製）を用いて、滴下原液が滴下原液貯留槽6から滴下ノズル2に送液される。

【0036】

次に、上記条件で調製された滴下原液を送液手段4としての無脈動ポンプ（富士テクノ工業（株）製）を使用して、無脈動、一定流量0.2L/minで滴下原液が滴下原液貯留槽6から滴下ノズル2に送液される。送液された滴下ノズル2は、加振器3によって、振動数75Hzの振動を与えられる。振動を与えられた滴下ノズル2は、一定の径を有する液滴を滴下する。

【0037】

アンモニア水溶液貯留槽5中のアンモニア水溶液へ滴下された液滴は、アンモニアと十分に反応し、重ウラン酸アンモニウム粒子（ADU粒子）となる。

【0038】

この重ウラン酸アンモニウム粒子を熟成、洗浄、乾燥した後、大気中500℃で焙焼し、三酸化ウラン粒子とした。さらに、三酸化ウラン粒子を、水素気流中で還元・焼結されることにより、高密度のセラミック状の二酸化ウラン粒子とした。

【0039】

篩い目開き625μmおよび575μmで、二酸化ウラン粒子の分級を行った。この分級の結果、粒径575～625μmの範囲内に入った二酸化ウラン粒子は、二酸化ウラン粒子全体の99.5%以上であった。

【0040】

なお、この実施例で得られた二酸化ウラン粒子の平均粒径は $600 \mu\text{m}$ であった。なお、平均粒径の測定方法は、P S A法である。

【0041】

P S A法とは、図3に示されるように、フォトダイオードおよび光源を使用する方法である。光源から照射された光がフォトダイオードおよび光源の間を動く二酸化ウラン粒子の陰影をフォトダイオードにより測定する。フォトダイオードにより測定された二酸化ウラン粒子の陰影により粒子の直径が求められる。以上の測定を多数の粒子に対して行うことにより、平均粒径を得た。

【0042】

[比較例]

比較例は、前記実施例において送液手段4としての無脈動ポンプ（富士テクノ工業（株）製）を使用したことに代えて、チューブポンプ（古江サイエンス（株）製）を使用したこと以外は、実施例と同様である。なお、チューブポンプ（古江サイエンス（株）製）を使用した際の平均流量は、0.2 L/minであった。

【0043】

また、篩い目開き $625 \mu\text{m}$ および $575 \mu\text{m}$ で、二酸化ウラン粒子の分級を行った。この分級の結果、粒径 $575 \sim 625 \mu\text{m}$ の範囲内に入った二酸化ウラン粒子は、二酸化ウラン粒子全体の10%以下であった。

【0044】

また、この比較例で得られた二酸化ウラン粒子の平均粒径は $600 \mu\text{m}$ であった。なお、平均粒径の測定方法は、前述したP S A法である。

【図面の簡単な説明】

【0045】

【図1】図1は、本発明に係る滴下装置を示す概略図である。

【図2】図2は、滴下原液を製造する手順を示すフローチャートである。

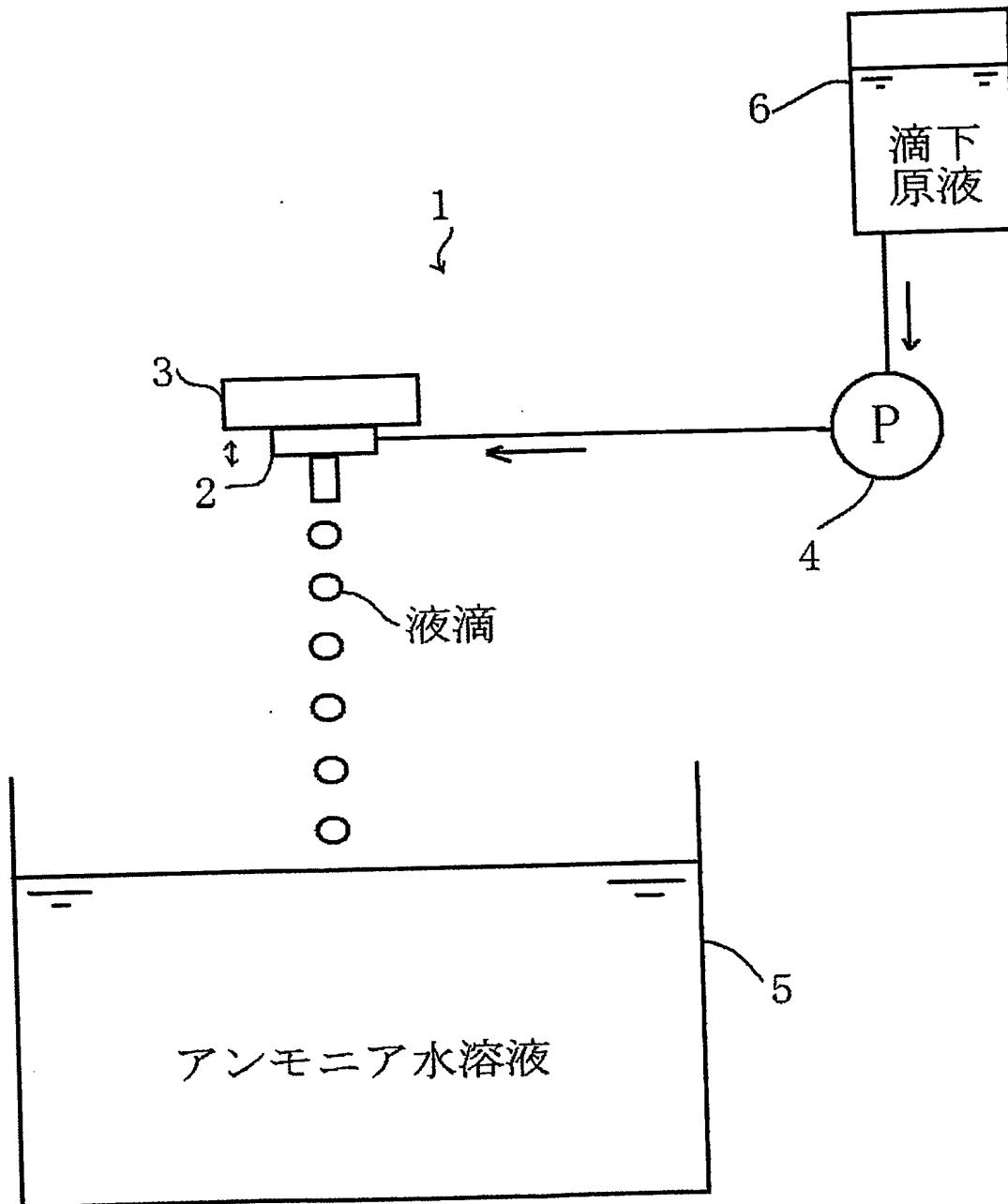
【図3】図3は、二酸化ウラン粒子の平均粒径を測定する方法を示している。

【符号の説明】

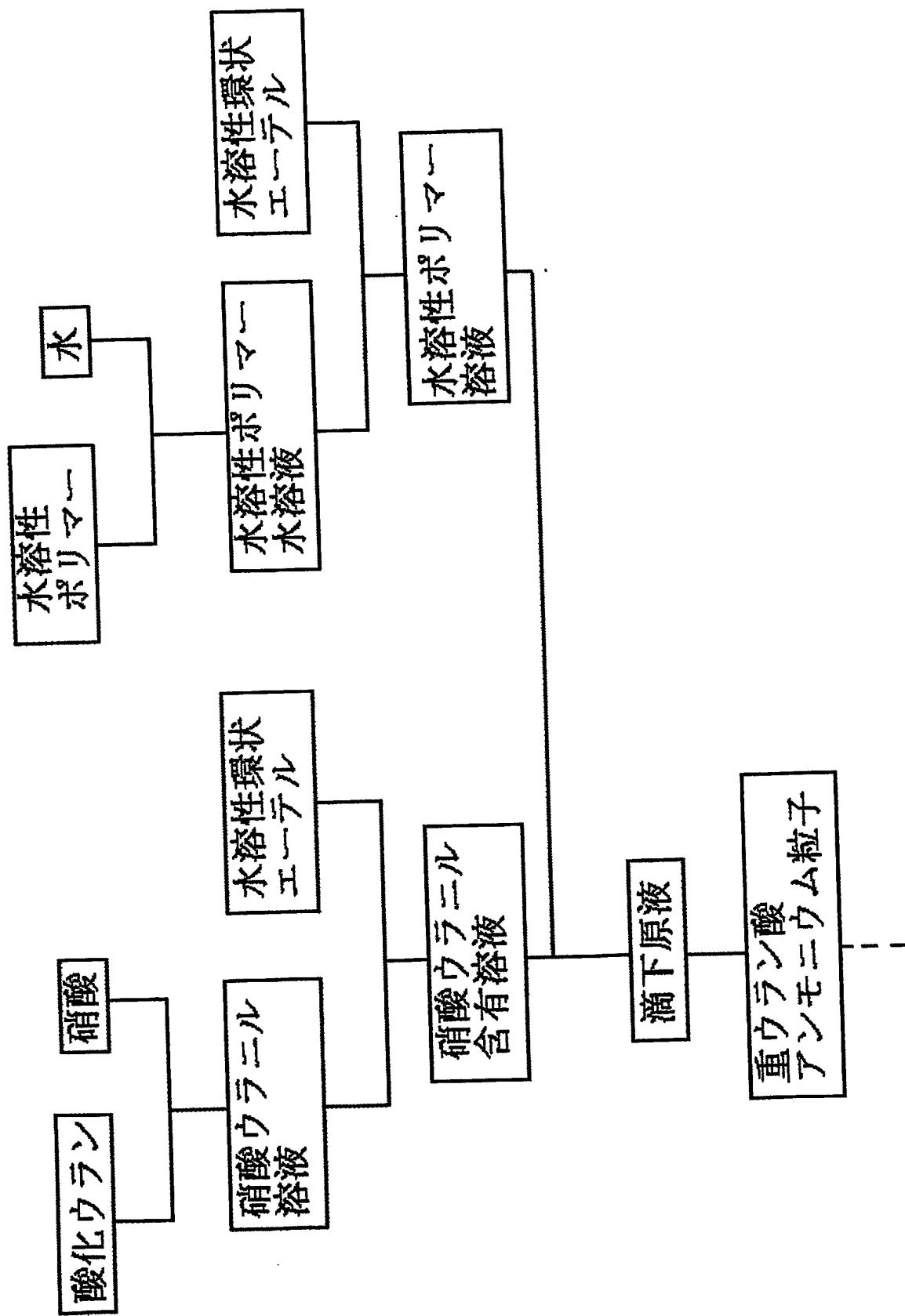
【0046】

- 1 滴下装置
- 2 滴下ノズル
- 3 加振器
- 4 送液手段
- 5 アンモニア水溶液貯留槽
- 6 滴下原液貯留槽

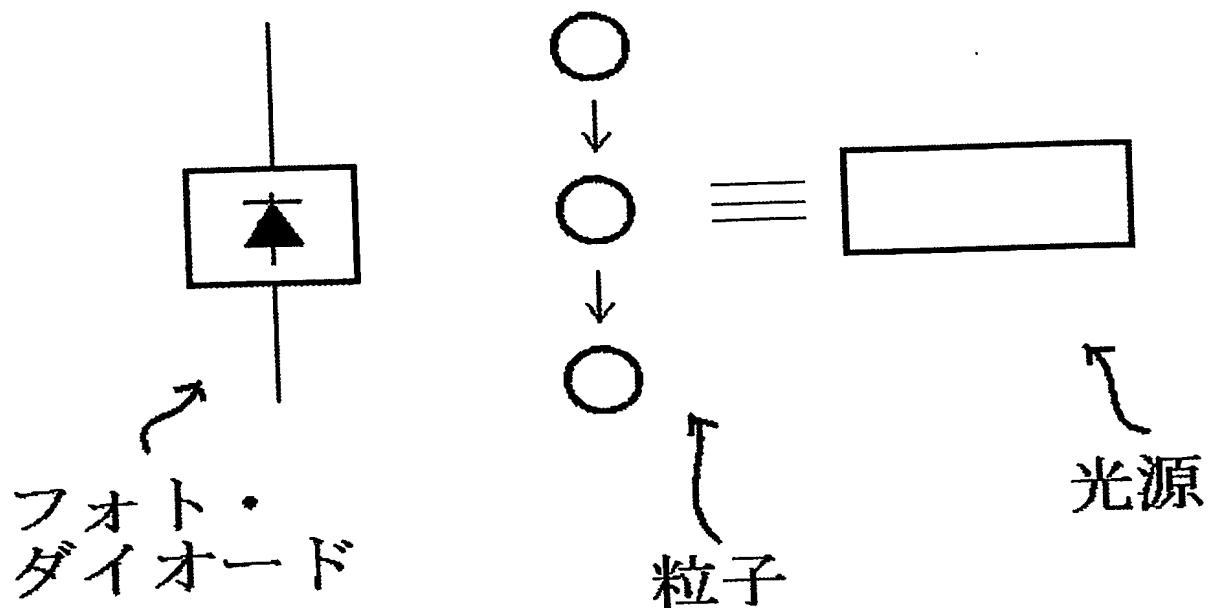
【書類名】 図面
【図1】



【図2】



【図 3】



【書類名】要約書

【要約】

【課題】粒子径がそろった重ウラン酸アンモニウム粒子および二酸化ウラン粒子を製造することができる滴下装置を提供すること。

【解決手段】前記課題を解決するための手段は、液滴を滴下する滴下ノズル2と、前記滴下ノズル2に振動を加える加振器3と、前記滴下ノズル2に対して、実質的に無振動で液体を供給する送液手段4とを備えてなることを特徴とする滴下装置1である。

【選択図】

図1

特願 2004-289669

出願人履歴情報

識別番号

[000165697]

1. 変更年月日 2001年 8月20日

[変更理由] 住所変更

住 所 東京都港区三田三丁目14番10号
氏 名 原子燃料工業株式会社

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record.**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

BLACK BORDERS

IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES

FADED TEXT OR DRAWING

BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING

SKEWED/SLANTED IMAGES

COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS

GRAY SCALE DOCUMENTS

LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT

REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY

OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.